Chemical Turbulence(シンポジウム「統計物理学の課題」, 研究会報告)

蔵本, 由紀

Chemical Turbulence

京大理　蔵 本 由 紀

周知のように非平衡統計力学は分子的混沌状態を介して，微視的な力学法則がどのようにして巨視的な発展法則を生むかを明らかにしてくれた。巨視的な運動法則から導かれるべき具体的運動様式は，系がおかれた種々の物理的状況，即ち発展法則に課せられる種々の拘束条件に応じて多様な現れ方をする。いわゆる「散逸力学系」と称せられるものは，物理的にはこれらの拘束条件を部分的に取り込んだところの巨視的発展法則に従う系であるといえよう。 また Prigogine 学派のいう「散逸構造」とは，広義には非平衡開放系という物理的状況に対応した拘束条件のもとに，散逸力学系が呈する開放系に特有な運動様式であると解釈できる。Prigogine 達は特に拡散を含んだ化学反応のモデルを通して，いくつかの特徴的な散逸構造が見出される事を示した。それらはすべて流体においても実現されるような発振現象，周期的な空間パターン等の規則的な時空パターンであるが，流体においてそうであるように，規則的パターン以外に乱流的な時空パターンの出現もまた反応と拡散の系で可能ではあるまいかと考えるのは自然であろう。実際，熱平衡から遠くへだたった状況下では，一般に系は自己組織的能力を獲得すると同時に，パターンの崩壊を通じてカオスに至る傾向もたえず系に内在しているという見方は，近年に急速にひろまってきているように思える。

乱流状態，あるいは力学系の非周期運動に関わる種々の問題の解明は，自然科学全体にとって今後の最大の課題のひとつであり，我々はやっとその入口に立至ったばかりである。新しい概念や方法，自然観がこの課題の追求の中から必ずや生れるであろう。本論は乱流状態そのものの解析は目的としないが，流体とは全く異質の散逸系である反応拡散系において，どのようにして乱流状態が発生してくるかを見ることによって，乱流状態が系の物理的性質の相異を越えて，いかに自然現象全体を貫ぬく普遍的な運動様式であるかを理解する上での一助になるであろう。また化学乱流は将来の応用も含めてそれ自身興味深い現象であること，またその理論的導出にあたって駆使される運動方程式の縮約法は，一般に多自由度系の動力学過程に対する物理的アプローチのひとつの典型を示しているのであるが，これらの点に関してはここで詳しく論じることはできない。

反応拡散系は，状態変数（$X_1, X_2, \cdots X_s$）$\equiv \boldsymbol{X}$に対する放物型非線型偏微分方程式

$$\dot{\boldsymbol{X}} = \boldsymbol{F}(\boldsymbol{X}) + D\nabla^2 \boldsymbol{X} \tag{1}$$

で表わされる系である。Dは通常対角行列。これは空間の各点に同一の力学系$\dot{\boldsymbol{X}}=\boldsymbol{F}(\boldsymbol{X})$が存在し，これらが近接領域と互に線型的に結合している系として頭にえがくことができる。反応拡散モデルはその名が示すように拡散を伴う化学反応系のダイナミックスを記述するモデルであるが，同種のモデルはその他に生命現象に関係した過程を記述する際のモデルとして多方面で用いられている。例えば，神経の興奮伝達を記述する Hodgkin–Huxley 方程式は４変数の反応拡散方程式である。また神経と同種の興奮性媒質が２次元的に拡がっている生体組織（例えば心筋）における電気生理学的現象を上のモデルによって理解しようとする多くの試みがある。更に反応拡散系は移動を伴う生物集団の生態学的過程を記述するモデル，より暗喩的には形態形成場のモデルとして用いられるなど広汎な応用性をもっている。

$\boldsymbol{X}$が３次元以上であれば，要素系$\dot{\boldsymbol{X}}=\boldsymbol{F}(\boldsymbol{X})$がすでに非周期的振舞いを示すことは原理的に可能である。化学反応の場合にはこの事は一様に攪はんした系において時間的非周期現象が現われるということに対応する。実際この現象は Belousov–Zhabotinski 反応で実験的にも観測されており，[1] その理論的説明も試みられている。[2] この場合，攪はんしなければ時間的空間的カオス，つまり乱流状態が出現することになろう。逆に時空的カオスが生じる為には要素系がカオティクでなければならないかというとそうではない。即ち要素系が固定点又はリミットサイクルという単純なアトラクターをもつ場合にも，拡散相互作用が系を乱流化させる可能性があるということである。現在までに理論的にわかっている限り，これには次の３つのケースがある。

Ａ．空間的に一様なリミットサイクル振動が自発的に不均一化して乱流状態となる。[3]

Ｂ．２次元，又は３次元媒質の波動伝播解において波面の空間的一様性に乱れが生じて乱流化する。[4]

Ｃ．２次元の回転するらせん波パターンが不安定化し乱流状態となる。[5]

以下各タイプについて若干の説明を加えよう。

タイプA

実験的には Yamazaki et al. による報告がある。[6] 要素系の安定なリミットサイクル振動解を$\boldsymbol{X}_0(t+\phi_0)=\boldsymbol{X}_0(t+T+\phi_0)$としよう。$\phi_0$は任意の定数である。図１のように，リミットサイクル振動の位相が空間的に変動している状況を考える。もしも位相が完全に一様なら，充分時間が経った後は，状態点は完全にリミットサイクル軌道上に乗るが，位相の空間的不均一性があれば状態点は一般に軌道からずれる。しかし空間変化が充分にゆるやかであれば，このずれは微小と考えられるから，この場合には系の状態は近似的に$\boldsymbol{X}(\boldsymbol{r},t)\simeq\boldsymbol{X}_0(t+\phi(\boldsymbol{r},t))$と書け，スカラー量$\phi(\boldsymbol{r},t)$だけで状態が記述できることになる。詳しい理論によれば，ϕは運動方程式

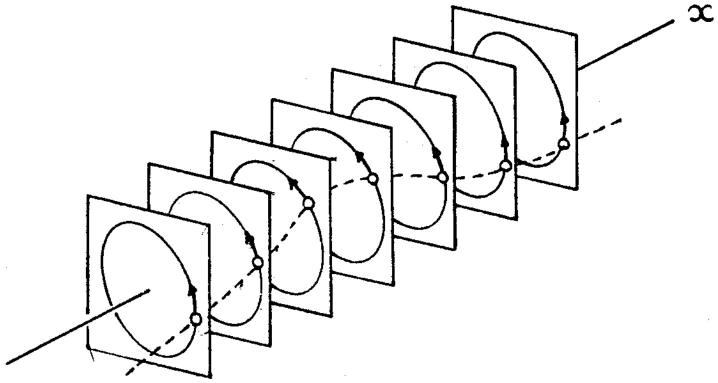

図1　空間座標x上に分布したリミットサイクル。位相の空間変化がゆるやかであれば，状態点はほぼリミットサイクル軌道上にある。

$$\dot{\phi} = \alpha \nabla^2 \phi + \beta (\nabla \phi)^2 - \gamma \nabla^2 \nabla^2 \phi$$

に従うことが示される。上に述べたようにこの式はϕの空間変化がゆるやかな場合にのみ成立つ式であり，この空間変化が一様な振動状態の不安定化から生じたものであれば，それはαが負の微小量であるということに対応する。具体的な反応拡散モデル，例えば Brusselator において，ある条件の下にαが負となる事が示せる。更に$\gamma > 0$を仮定すると，ϕ，$\boldsymbol{r}$，tの適当なスケールに対して

$$\dot{\phi} = -\nabla^2 \phi + (\nabla \phi)^2 - \nabla^2 \nabla^2 \phi \tag{3}$$

なる，パラメターを含まない方程式が得られる。ある程度以上の長さを持つ1次元系において(3)の解が乱流的様相を示すことは計算機シミュレーションによって示すことができる。このように一様な振動状態の弱い不安定化に伴って現われる乱流状態は，モデルの具体的な形（$\boldsymbol{F}$の関数形）に依存することなく，(3)のようにユニバーサルな法則に支配されることが判る。

タイプB

図2を図1と比較すれば両者の類似性に気付くであろう。即ち，要素系の振動解に対応するものはここでは，1次元系$\dot{\boldsymbol{X}} = \boldsymbol{F}(\boldsymbol{X}) + D\partial_x^2 \boldsymbol{X}$の定常波動伝播解$\boldsymbol{X}_0(z+\phi_0)$，$z = x - vt$であり，波面がゆるやかに変動しているパターンは近似的に$\boldsymbol{X}(x, y, t) \simeq \boldsymbol{X}_0(z+\phi(y, t))$で表わされるであろう。再び$\phi$は運動方程式

$$\dot{\phi} = \alpha \partial_y^2 \phi + \beta (\partial_y \phi)^2 - \gamma \partial_y^4 \phi \tag{4}$$

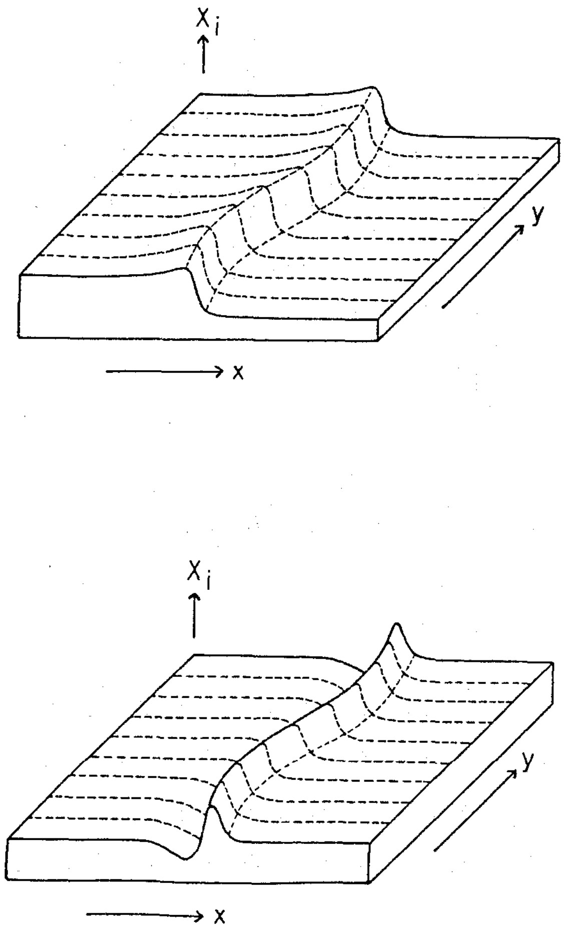

図2　2次元の波動伝播の概念図。垂直方向は或る成分 X_i の振幅をあらわす。波面がゆるやかに空間変化していれば，或る y に対する次のプロファイルは，1次元の定常伝播解のそれとほぼ同一である。

に従うことが理論的に示される。この式が成立する為の条件は前と同様であり，$\alpha<0$ を示す具体例も存在する。このように波面の弱い不安定化に伴って現われる乱流状態は本質的にタイプAと同一である。

タイプC

らせん波のパターンは反応拡散系の理論で最も大きな関心が寄せられている現象であるが，現在のところ完全な解析解が得られるモデルは存在せず，$\lambda-\omega$モデルと呼ばれる次のような対称性の良い2成分モデルに対してある程度の解析的研究がなされているのみである。[7] 2成分をX，Yとし，複素量$W=X+iY$を用いるとこのモデルは

$$\dot{W} = (i\omega(R) + \lambda(R))W + \nabla^2 W \tag{5}$$

と書ける。但し，$R = |W|$，λとωはRの実関数である。またXとYに対する拡散係数は等しいと仮定し，これを1とおいた。最も簡単な場合として，$\omega(R) = -\alpha R^2$，$\lambda(R) = 1 - R^2$ととると(5)はTDGL方程式に似た形

$$\dot{W} = W - (1 + i\alpha)\,|W|^2 W + \nabla^2 W \tag{6}$$

となる。上式は反応拡散方程式(1)において空間的に一様な定常解がHopf 分岐を起す点の直上で（適当な変数変換により）一般的に成立する式であるが，ここでは(6)を単に特別な反応拡散モデルと考えておこう。計算機シミュレーションの結果のみを示すと，$|\alpha|$が比較的小さい場合には，適当な初期条件の下で図3のように規則的に回転するらせん波のパターンが得られる。しかし，$|\alpha|$を大きくしてゆくと，図4のようにこのパターンは不安定化し，乱れが周囲に拡がってゆく。この乱れの原因は，渦巻きの中心部分と外部領域における回転数の差がいちぢるしくなってこれらの領域の間に同期運動が保てなくなる為と考えられる。このような乱流は実験的に未だ観測されていない。しかし，関連のありそうな現象として，Winfree は Belousov–Zhabotinski 反応系のらせん波において，中心領域が不規則に運動する事実を見出した。[8] 同様の不規則運動は，Allessie らによって，心筋に励起された回転的興奮波のコア領域に対しても見出された。[9] 但しこれらはいずれも回転波自身を破壊してしまうほど強い乱れではない。一方，心筋における病理的拍動現象として fibrillation と称する不規則な細動が古くから知られており，これは心筋組織に何らかの原因によって励起された多数の乱雑な回転波によるものであるとする有力な考えがあるが，[10] 現象的には図4はこれと酷示している。

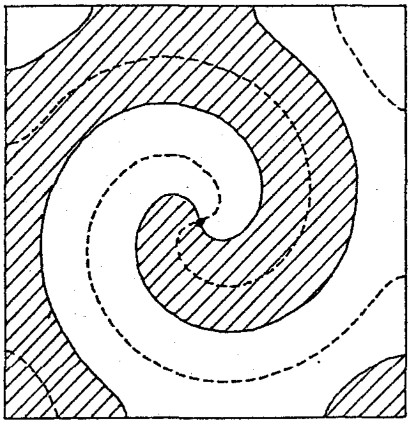

図3　2次元のらせん波パターン。パターン全体は一定角速度で回転している。斜線部は成分Xが正の領域。

以上，現在までに明らかにされた3つのタイプの乱流化現象を述べたが，もちろんこれら以外にもいろいろな乱流化の可能性があると思われる。それらをひとつひとつ見出してゆくこと

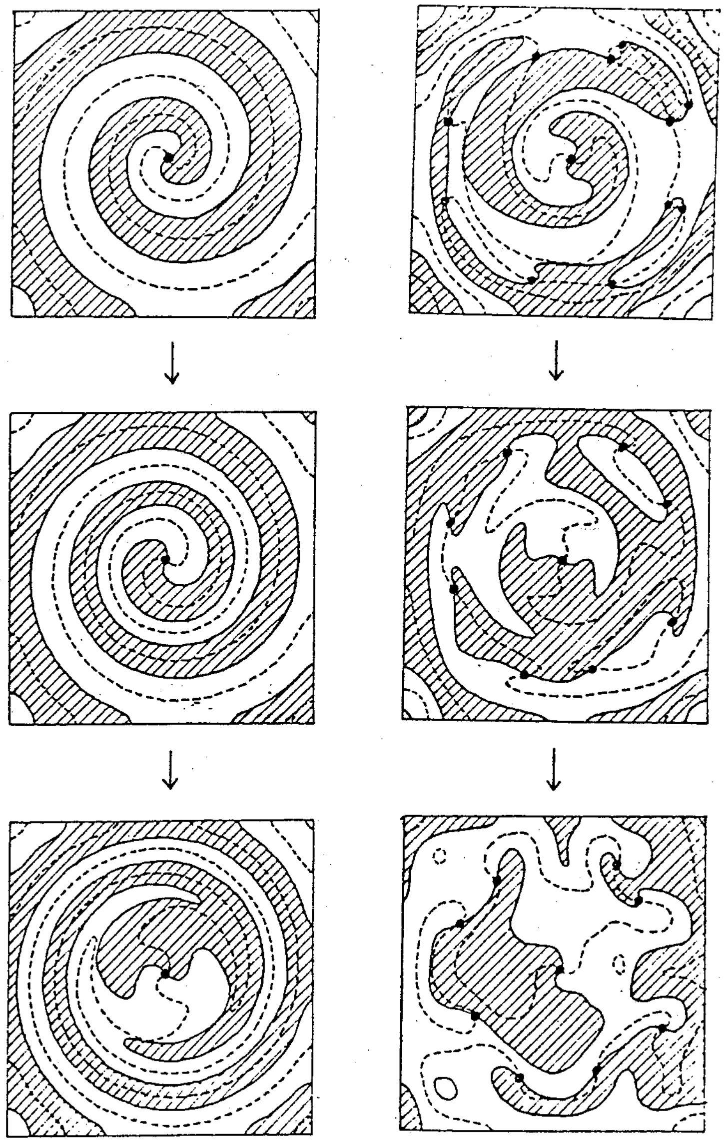

図4　　らせん波パターンの崩壊過程。黒丸はコア（$X=Y=0$ をみたす点）を示す。新しくコアが生成されている事に注意。

も重要であるが，総じて自然界における乱流現象の普遍性は驚嘆に値するものであり，これが特にライフプロセスに関係の深い反応拡散型の媒質にまで及んでいるということははなはだ興味深く，乱流と生命現象との関連についてさまざまな想像をめぐらす誘惑にかられる。

参 考 文 献

1) J.L. Hudson et al., J. Chem. Phys. **71** (1979), 1601.
H. Nagashima, J. Phys. Soc. Japan (to appear).

2) K. Tomita and I. Tsuda, Prog. Theor. Phys. **64** (1980).

3) Y. Kuramoto, Prog. Theor. Phys. Suppl. **64** (1978), 346.

4) Y. Kuramoto, *Dynamics of Synergetic Systems* (ed. H. Haken, Springer, 1980), 134.

5) Y. Kuramoto and S. Koga (in preparation).

6) H. Yamazaki, Y. Oono and K. Hirakawa, J. Phys. Soc. Japan **46** (1979), 721.

7) T. Yamada and Y. Kuramoto, Prog. Theor. Phys. **55** (1976), 2035.
D.S. Cohen, J. Neu and R.R. Rosales, SIAM J. Appl. Math. **35** (1978), 536.

8) A.T. Winfree, *Theoretical Chemistry 4* (ed. H. Eyring and D. Henderson, Academic, N.Y. 1978), 1.
O.E. Rössler and C. Kahlert, Z. Naturforsch. **34a** (1979), 565.

9) M.A. Allessie et al. Circul. Res. **39** (1976), 168.

10) 例えば, A.T. Winfree, *The Geometry of Biological Time* (Springer, 1980) Chap. 10, Chap. 14.